

05;07

©1995 г.

ФЛУКТУАЦИОННАЯ ПЕРЕСТРОЙКА СТРУКТУРЫ И ТЕРМОСТИМУЛИРОВАННАЯ ЛЮМИНЕСЦЕНЦИЯ ВеО

И.Н.Огородников, А.В.Кружалов

Уральский государственный технический университет,
620002, Екатеринбург, Россия

(Поступило в Редакцию 18 апреля 1994 г.)

В окончательной редакции 16 января 1995 г.)

Проведено исследование возмущающего воздействия флукутационной перестройки структуры (ФПС) на регулярные каналы релаксации электронных возбуждений на примере модельного объекта — низкосимметричного широкозонного диэлектрика оксида бериллия с использованием метода модуляционной термоактивационной спектроскопии центров захвата и анализа результатов в рамках модели ФПС. Показано, что отклик термостимулированного процесса с кинетикой, отличной от таковой для первого порядка, на возмущающее воздействие ФПС зависит от начальной концентрации актуальных центров захвата. Расчеты в рамках модели ФПС позволили выделить две альтернативные ситуации: ФПС оказывает воздействие либо на все центры захвата данного сорта, либо на их часть. С ростом концентрации центров захвата в первом случае величина надтермического вклада ФПС в общий термостимулированный процесс возрастает, во втором уменьшается. Это дает возможность выбора между двумя модельными случаями при анализе экспериментальных данных.

Экспериментальное исследование ТСЛ ВеО с концентрационной серией зондовых V^{2+} -центров в области 300–600 К методом модуляционной термоактивационной спектроскопии в сочетании с анализом результатов в модели ФПС позволило объяснить наблюдаемые “аномалии” в кинетике термостимулированного процесса ВеО при 420 К понижением высоты потенциального барьера части V^{2+} -центров под влиянием размытых фазовых переходов в катионной подрешетке ВеО. Этот результат имеет важное практическое значение, поскольку надтермический вклад “возмущенных” центров в области основного дозиметрического пика ТСЛ ВеО (400–600 К) приводит к ухудшению воспроизводимости дозиметрической информации в области малых доз ионизирующих излучений.

Введение

В работах [1–3] нами исследована спонтанная эмиссия электронов и фотонов, индуцированная флукутационной перестройкой структуры (ФПС). Под термином ФПС при этом объединены различные термофлукутационные процессы в объеме и на поверхности твердого тела (пироэлектричество, адсорбция, структурные превращения), удовлетворяющие соотношению

$$\tau_L \ll \tau_F \ll \tau_M, \quad (1)$$

где τ_L , τ_F , τ_M — характерные времена колебаний кристаллической решетки (L), флуктуационной перестройки (F), регистрируемого процесса (M).

Общей чертой этих процессов является способность оказывать возмущающее воздействие на делокализацию, миграцию и релаксацию электронных возбуждений. Полученные теоретические и экспериментальные результаты касались воздействия ФПС на термостимулированные процессы с кинетикой первого порядка. Из теории термостимулированных явлений [4] известно, что для кинетики, отличной от первого порядка, имеет место зависимость термоактивационных параметров от концентрации актуальных центров. Подобную картину следует ожидать и для процессов в условиях ФПС.

Целью настоящей работы явилось продолжение цикла исследований [1-3] спонтанной (надтермической) эмиссии в условиях флуктуационной перестройки структуры на примере модельного низкосимметричного широкозонного диэлектрика BeO с привлечением методов модуляционной термоактивационной спектроскопии центров захвата и модели флуктуационной перестройки структуры.

Модельные представления

Сформулируем основные положения модели ФПС [2,5] применительно к термостимулированному процессу, подчиняющемуся кинетике произвольного порядка. В рамках этой модели предполагается, что ФПС является термофлуктуационным процессом, который может оказывать возмущающее воздействие на регулярные каналы делокализации, миграции и релаксации электронных возбуждений. В частности, ФПС с энергией термической активации Q может с вероятностью f_i индуцировать состояние потенциального барьера с энергией E_i . При выполнении соотношения (1) эффективная средняя высота потенциального барьера будет определяться соотношением

$$\bar{E} = \frac{\sum_i f_i \cdot E_i}{\sum_i f_i}, \quad (2)$$

$$f_i = f_{i0} \exp\left(-\frac{Q}{E_B T}\right). \quad (3)$$

Анализ простейшего случая двух состояний (основного и возбужденного) позволяет уловить основные тенденции возмущающего воздействия ФПС на регулярные каналы релаксации электронных возбуждений. В этом случае (2) сведется к (4)

$$\bar{E} = E_1 + \frac{\Delta E}{1 + p}, \quad (4)$$

$$\Delta E = E_0 - E_i; \quad p = \frac{f_{10}}{f_0} \exp\left(-\frac{Q}{K_B T}\right), \quad (5)$$

где K_B — постоянная Больцмана.

Интенсивность термостимулированной эмиссии электронов или фотонов в рамках трехпараметрической модели [4] в случае кинетики произвольного порядка (b) описывается выражением

$$I(T) = S n_0 \exp\left(-\frac{E}{K_B T}\right) \cdot \left\{ \frac{(b-1)S}{v} \int_{T_0}^T \exp\left(-\frac{E}{K_B T'}\right) dT' + 1 \right\}^{-\frac{b}{b-1}}, \quad (6)$$

$$S = S' n_0^{(b-1)}, \quad (7)$$

где S' — предэкспоненциальный множитель, n_0 — начальная концентрация локализованных носителей заряда, E — энергия активации, v — скорость линейного нагрева.

В [2,3] нами подробно проанализирован частный случай влияния ФПС на термостимулированный процесс с кинетикой первого порядка ($b = 1$). В случае кинетики произвольного порядка (6) условие максимума термостимулированной эмиссии электронов и фотонов при линейном нагреве в отсутствие ФПС определяется трансцендентным уравнением (8)

$$E - A \cdot f(n_0, b) = 0, \quad (8)$$

$$A = \frac{S K_B T_m^2}{v} \exp\left(-\frac{E}{K_B T_m}\right), \quad (9)$$

$$f(n_0, b) = b \left\{ \frac{(b-1)S}{v} \int_{T_0}^{T_m} \exp\left(-\frac{E}{K_B T'}\right) dT' + 1 \right\}^{-1}. \quad (10)$$

В присутствии ФПС условие максимума (8) для линейного закона нагрева с учетом (4) и (6) преобразуется в (11)

$$\bar{E} - A f(n_0, b) = T_m \frac{d\bar{E}}{dT} \Big|_{T=T_m}. \quad (11)$$

Эффективное значение высоты потенциального барьера \bar{E} не поддается непосредственному экспериментальному определению. Современные методы модуляционной термоактивационной спектроскопии позволяют определить лишь экспериментальные средние значения энергии активации $\langle E \rangle(T)$, которые, вообще говоря, могут существенно отличаться от реальных термоактивационных параметров [5]

$$\langle E \rangle = \frac{\int_E \int_S \mathcal{H}_{E,S} I_{E,S}(T) E S dE dS}{\int_E \int_S \mathcal{H}_{E,S} I_{E,S} dE dS}, \quad (12)$$

где $\mathcal{H}_{E,S}$ имеет смысл функций распределения центров захвата по энергиям и частотным факторам, $I_{E,S}(T)$ определяет вклад данного сорта центров в общий рекомбинационный процесс.

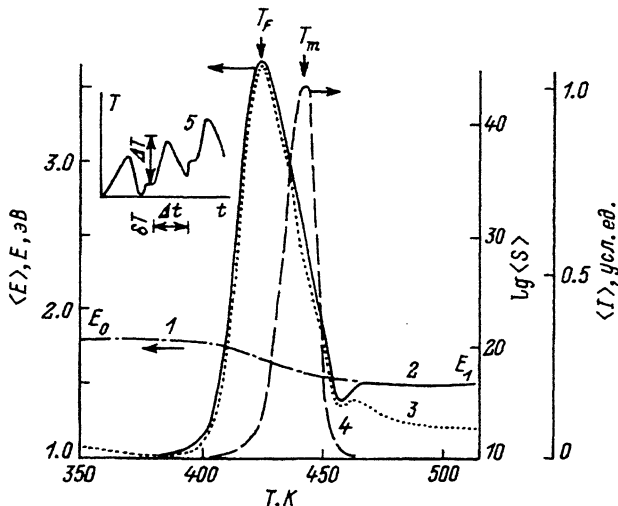


Рис. 1. Расчетные температурные зависимости $\bar{E}(T)$ (1), $\langle E \rangle(T)$ (2), $\langle S \rangle(T)$ (3), $\langle I \rangle(T)$ (4) кристалла с $n_0 = 10^{16} \text{ см}^{-3}$ ($E_0 = 1.8 \text{ эВ}$, $E_1 = 1.5 \text{ эВ}$, $S' = 10^{-3}$, $b = 2$) в условиях ФПС (I) ($Q = 1.2 \text{ эВ}$, $f_{10}/f_0 = 5 \cdot 10^{14}$) при линейно осциллирующем изменении температуры (5) ($\Delta T = 10 \text{ К}$, $\delta T = 3 \text{ К}$, $\Delta t = 77 \text{ с}$).

Более подробное обсуждение математического аппарата модуляционной термоактивационной спектроскопии изложено, например, в [6]. При линейно осциллирующем изменении температуры (рис. 1) вычисление значений $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ производится для каждой k -й осцилляции температуры

$$\langle E_k \rangle = -K_B \left. \frac{d \ln I}{d(1/T)} \right|_{T=T_k}, \quad (13)$$

$$\langle S \rangle = \frac{1}{t_k} \left(\frac{\langle E_k \rangle}{K_B T_k} \cdot \frac{T_k - T_{k-1}}{T_k} - \frac{\langle I_k \rangle - \langle I_{k-1} \rangle}{\langle I_k \rangle} \right) \exp \left(\frac{\langle E_k \rangle}{K_B T_k} \right), \quad (14)$$

где t — период осцилляции температуры (рис. 1); T_k , $\langle I_k \rangle$ — максимальные значения температуры и интенсивности, достигнутые во время k -й осцилляции температуры.

Лишь в ограниченном числе случаев $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ могут быть сопоставлены с реальными термоактивационными параметрами [5]. Наличие ФПС вносит специфический вклад в кинетику термостимулированного процесса и приводит к изменению наблюдаемых значений $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$. Анализ этих возмущений дает ценную информацию о некоторых параметрах ФПС. Подставляя (6) в (13) для области начальных приращений интенсивности получим

$$\langle E \rangle = \bar{E} - T \frac{d\bar{E}}{dT} - A \cdot f(n_0, b). \quad (15)$$

Из (15) видно, что кривые $\langle E \rangle(T)$ и $\bar{E}(T)$ ведут себя антибатно: при понижении \bar{E} значения $\langle E \rangle(T)$ возрастают, и наоборот. В частном

случае ($b = 1$) соотношения (8), (11), (13), (15) не зависят от исходной концентрации локализованных носителей заряда n_0 и сводятся к такому, приведенным нами в [2]. В более общем случае ($b \neq 1$) параметры термостимулированного процесса (6) так или иначе зависят от величины n_0 . Анализ этих зависимостей проведен путем численного моделирования термостимулированного процесса (6) при линейно осциллирующем законе нагрева (рис. 1). Без уменьшения общности обсуждения для анализа выбрана кинетика второго порядка ($b = 2$). При построении модели ФПС выделены два случая, различающихся количественно, но дающих качественно разные результаты: I — при любой концентрации локализованных носителей заряда n_0 ФПС воздействует на все центры захвата данного сорта; II — ФПС оказывает влияние лишь на небольшую часть центров (n_{01}), тогда как оставшаяся часть центров захвата данного сорта (n_{02}) не испытывает возмущающего воздействия ($n_{01} \ll n_{02}$).

М о д е л ь н ы й с л у ч а й (I). В табл. 1 приведены расчетные концентрационные зависимости температурного положения (T_m), амплитуды ($\langle I_m \rangle$), значений $\langle E \rangle$ и $\langle S \rangle$ для пика интенсивности “невозмущенного” термостимулированного процесса. Как следует из табл. 1, при изменении n_0 на три порядка происходит увеличение $\lg(S)$ и $\lg\langle I_m \rangle$ на три декады и уменьшение T_m на 70 К. Это определяется главным образом зависимостью S от концентрации n_0 (7). Величина $\langle E \rangle(T)$ при этом не испытывает заметных изменений.

Тот же самый термостимулированный процесс в условиях ФПС ($Q = 1.2$ эВ, $f_{10}/f_0 = 5 \cdot 10^{14}$, $\Delta E = 0.3$ эВ) обуславливает изменение \bar{E} от 1.8 до 1.5 эВ (рис. 1). Максимум пика $\langle I(T) \rangle$ смещен в сторону более низких температур по сравнению с предыдущим случаем вследствие термостимулированного уменьшения \bar{E} . Можно также отметить больший диапазон изменения $\langle S \rangle$ и $\langle I_m \rangle$ при вариации n_0 (табл. 1). Принципиально важным обстоятельством является концентрационная зависимость $\langle E \rangle(T)$ (табл. 1). В соответствии с (15) в области ФПС по мере уменьшения $\bar{E}T$ наблюдаемое значение $\langle E \rangle(T)$ увеличивается. Численные значения $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ при этом не могут быть сопоставлены с энергией и частотным фактором термостимулированного процесса, а отражают лишь вклад надтермической эмиссии, вызванной ФПС. Характерной чертой данного процесса является максимум на кривых $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ в области ФПС при 415 К (рис. 1). Его температурное положение T_F , значения $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$ не испытывают значительной концентрационной зависимости, определяется лишь параметрами ФПС и значениями E_0 и E_1 . Относительно большой диапазон изменения значений $\langle E \rangle(T_m)$ и $\langle S \rangle(T_m)$ в области максимума пика $\langle I \rangle(T)$ в значительной мере определяется смещением температурного положения максимума в сторону T_F ($T_m \rightarrow T_F$) при возрастании n_0 (табл. 1).

М о д е л ь н ы й с л у ч а й (II). Иной результат получен при анализе ситуации, когда ФПС воздействует не на все центры захвата данного сорта, а лишь на малую их часть. При этом имеют место одновременно два термостимулированных процесса: а) “невозмущенный” процесс с энергией активации E_0 и начальной концентрацией локализованных носителей n_{02} ; б) “возмущенный” процесс с энергией активации \bar{E} , ко-

Таблица 1. Зависимость параметров термостимулированного процесса от исходной концентрации локализованных носителей заряда n_0 для различных моделей ФПС

n_0 , 10^{15} см^{-3}	Без ФПС				ФПС (I)				ФПС (II)					
	T_m , К	$\lg(S_m)$	$\langle I_m \rangle$, усл.ед.	T_m , К	$\lg(S_m)$	$\langle I_m \rangle$, усл.ед.	$\langle E_m \rangle$, эВ	T_m , К	$\lg(S_m)$	$\langle I_m \rangle$, усл.ед.	$\langle E_m \rangle$, эВ	T_F , К	$\langle E_F \rangle$, эВ	$\lg(S_F)$
1	535	14.19	5	475	18.45	9	1.89	556	11.27	4	1.54	427	3.60	39.94
5	517	14.82	25	445	24.25	63	2.35	532	11.93	20	1.54	427	3.45	38.18
10	508	15.12	53	442	26.23	143	2.50	523	12.32	41	1.53	427	3.11	34.05
30	496	15.57	172	436	31.17	545	2.89	508	12.66	133	1.53	433	2.24	23.12
50	490	15.79	296	433	34.06	1010	3.12	499	12.90	230	1.54	436	1.92	19.01
80	484	16.01	485	430	37.14	1750	3.36	495	13.04	376	1.54	436	1.72	16.66
100	484	16.03	614	430	39.93	2300	3.34	493	13.14	479	1.54	436	1.66	15.99
300	472	16.50	1980	424	42.81	7750	3.79	478	13.62	1560	1.53	413	1.56	15.53
500	466	16.74	3390	424	42.21	14500	3.73	479	13.83	2700	1.53	412	1.53	15.64
1000	460	17.00	7080	421	44.54	31400	3.90	463	14.14	5611	1.53	406	1.52	15.85

П р и м е ч а н и е. Параметры центров захвата: $E_0 = 1.8$ эВ, $E_1 = 1.5$ эВ, $S' = 10^{-3} \text{ с}^{-1}$, $b = 2$; ФПС: $Q = 1.2$ эВ, $f_{10}/f_0 = 5 \cdot 10^4$. В случае ФПС (I) температурное положение ($T_F = 415$ К) и амплитуда максимумов (E_F) и (S_F) не зависят от концентрации n_0 . Индекс m соответствует значению параметра при $T = T_m$, а индекс F — при $T = T_F$. Для ФПС (II) величина n_0 в таблице соответствует параметру n_{02} , а $n_{01} = 10^{15} \text{ см}^{-3}$.

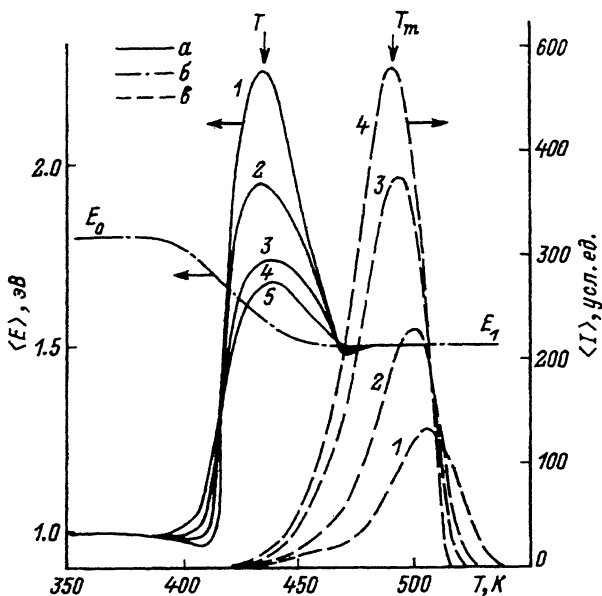


Рис. 2. Расчетные температурные зависимости средней энергии активации $\langle E \rangle(T)$ (а), средней высоты потенциального барьера $E(T)$ (б), амплитуд осцилляций интенсивности $\langle I \rangle(T)$ (в) кристаллов с концентрацией центров $n_{02} = 3$ (1), 50 (2), 80 (3), 100 ($\cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$) (4) в условиях ФПС (II) ($Q = 1.2 \text{ эВ}$, $f_{10}/f_0 = 5 \cdot 10^{14}$) (5).

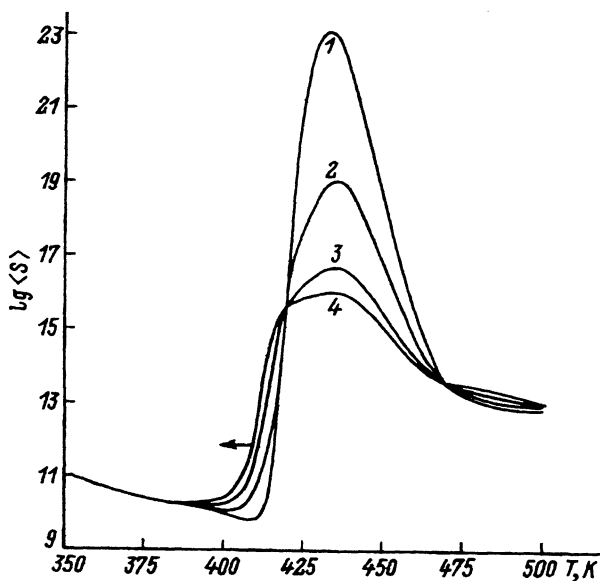


Рис. 3. Расчетные температурные зависимости среднего частотного фактора $\langle S \rangle(T)$ кристаллов с концентрацией центров $n_{02} = 3$ (1), 50 (2), 80 (3), 100 ($\cdot 10^{15} \text{ см}^{-3}$) (4) в условиях ФПС (II) ($Q = 1.2 \text{ эВ}$, $f_{10}/f_0 = 5 \cdot 10^{14}$).

торая изменяется от E_0 до E_1 под воздействием ФПС, и начальной концентрацией n_{01} ($n_{01} \ll n_{02}$).

Результаты численного моделирования (рис. 2, 3) показывают, что при изменении n_{02} в широкой области значений доминирует пик ТСЛ $\langle I \rangle(T)$, обусловленный процессом a , вклад процесса b в зависимость $\langle I \rangle(T)$ в этой области температур пренебрежимо мал. Напротив, в области ФПС (415 К) процесс b дает существенный надтермический вклад в кинетику термостимулированного процесса, а вклад процесса a невелик и зависит от n_{02} . Это проявляется в виде повышенных значений $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ в области ФПС, численные значения которых могут принимать произвольные значения. Важно отметить, что при изменении n_{02} в широких пределах температурное положение максимума на кривых $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ в области ФПС не испытывает значительных изменений с ростом n_{02} , определяется параметрами ФПС и значениями E_0 и E_1 . В то же время амплитуда этого максимума на кривых $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ имеет антибатную зависимость от n_0 : при малых значениях n_0 значения $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$ максимальны; с ростом концентрации n_0 их величина быстро уменьшается, приближаясь к реальным значениям термоактивационных параметров (табл. 1). Действительно, из (12) непосредственно вытекает, что с ростом вклада какого-либо элементарного процесса в общий термостимулированный процесс значения $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ приближаются к таковым для данного элементарного процесса. Поэтому с ростом n_{02} вклад процесса a превалирует, а роль процесса b снижается.

Подытоживая анализ результатов математического моделирования термостимулированного процесса с кинетикой второго порядка в условиях ФПС, понижающей высоту потенциального барьера, отметим, что в обоих рассмотренных случаях численные значения экспериментальных параметров $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ в области ФПС могут принимать произвольные повышенные значения, не соответствующие реальным термоактивационным параметрам E и S . Однако концентрационная зависимость значений $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$ при этом различна. ФПС (I) оказывает воздействие на все центры захвата данного сорта, и значения $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$ возрастают с ростом n_0 . ФПС (II) влияет лишь на малую часть центров захвата данного сорта, и с ростом n_{02} происходит снижение наблюдаемых значений $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$. Это может иметь важное методическое значение при анализе экспериментальных результатов.

Эксперимент

В работе использованы монокристаллы оксида бериллия оптического качества в виде плоскопараллельных пластинок полярного среза ($10 \times 10 \times 0.5$ мм), выращенные В.А.Масловым [7]. В процессе выращивания кристаллы легировали гетеровалентными примесями V^{3+} и Li^+ . Общее содержание примесей в BeO не превышало 10^{-2} мас.%. Измерения методом электронного парамагнитного резонанса (ЭПР) выполнены на модифицированном радиоспектрометре X-полосы РЭ-1302. Измерение температурной зависимости¹ $\langle E \rangle(T)$ и $\langle I \rangle(T)$ кристаллов BeO

¹ Измерение средней энергии термической активации кристаллов BeO проведено нами в НИИ ФТТ Латвии (Рига).

осуществлены методом модуляционной термоактивационной спектроскопии центров захвата. Особенностью метода является модуляция монотонного закона нагрева образца относительно быстрыми оцилляциями температуры "нагрев-охлаждение" (рис. 1), которые вызывают соответствующие оцилляции интенсивности термостимулированной люминесценции $I(t)$. В ходе измерения для каждой k -й оцилляции температуры $T(t)$ регистрировались кинетика оцилляции люминесценции $I_k(t)$, максимальная температура T_k и интенсивность $\langle I_k \rangle$. По этим данным с учетом (13) и (15) вычислены значения $\langle E_k \rangle$ и $\langle S_k \rangle$. Экспериментальные результаты представлены в виде температурных зависимостей $\langle I \rangle(T)$, $\langle E \rangle(T)$, $\langle S \rangle(T)$, где индекс k для краткости опущен. Облучение рентгеновским излучением осуществлено при 290 К с использованием рентгеновского аппарата УРС-55 (Cu антикатод) экспозиционной дозой около $0.1 \text{ Кл} \cdot \text{кг}^{-1}$.

Результаты эксперимента и обсуждения

Необлученные кристаллы BeO диамагнитны. Облучение рентгеновским излучением приводит к изменению зарядового состояния биографических дефектов BeO. Методом ЭПР зафиксированы парамагнитные центры V^- , V_B , B^{2+} , $[Li]^0$, идентификация и основные свойства которых описаны в [8]. Наибольший интерес для настоящей работы представляет электронный B^{2+} центр. Термический распад B^{2+} -центра сопровождается делокализацией электрона (16).



Последующая рекомбинация делокализованных электронов на высокотемпературных дырочных центрах V -типа обуславливает ТСЛ. Согласно современным представлениям о ТСЛ оксида бериллия [9,10], при рекомбинационных процессах в BeO с участием точечных дефектов на основе гетеровалентных примесей замещения происходит возбуждение одного и того же собственного центра свечения — автолокализованного экситона e_s^0 , излучательная аннигиляция которого обуславливает люминесценцию в полосе 4.9 эВ и не зависит от характеристик центра рекомбинации. Для скорости линейного нагрева $0.3 \text{ К} \cdot \text{с}^{-1}$ с термическим распадом B^{2+} -центра (16) сопоставляют пик ТСЛ при 540 К [10]. Его форма соответствует таковой для термостимулированного процесса с кинетикой второго порядка. В случае модуляционной термоактивационной спектроскопии используются более низкие скорости изменения температуры и соответствующий пик на кривой $\langle I \rangle(T)$ расположен при более низких температурах ($T_m = 450-500 \text{ К}$) (рис. 4). Анализ табл. 2 показывает, что с ростом концентрации B^{2+} -центров происходит возрастание интенсивности пика $\langle I \rangle(T_m)$.

Температурная зависимость $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ кристаллов BeO в области 300–600 К не является простой (рис. 4, 5). В области 380–420 К наблюдается резкое возрастание $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ при отсутствии заметных изменений в интенсивности $\langle I \rangle(T)$. С точки зрения теории термостимулированных процессов [4] амплитуда этого прироста (рис. 4, 5) не может определяться только лишь термофлуктуационной делокализацией носителей заряда. Кстати сказать, подобное "аномальное" возрастание $\langle E \rangle(T)$ при 420 К для термостимулированной экзоэлектронной эмиссии керамики BeO было замечено ранее [11]. Как следует из

Таблица 2. Зависимость термоактивационных параметров кристалла BeO от содержания некоторых парамагнитных центров

Номер образца BeO	Содержание ПЦ, усл.ед.				T_F, K	$\lg \langle S_F \rangle$	$\langle E_F \rangle, \text{эВ}$	$\langle I_m \rangle, \text{усл.ед.}$
	B^{2+}	$[Li]^0$	V^-	V_B				
1	4	—	12	8	420	19.0	1.77	80
2	6	—	20	6	420	17.6	1.70	120
3	30	2	—	5	415	15.8	1.65	270
4	41	8	—	9	405	15.3	1.50	500
5	53	—	4	13	415	15.0	1.55	800

П р и м е ч а н и е. Концентрации одноптипных ПЦ для разных образцов сопоставимы.

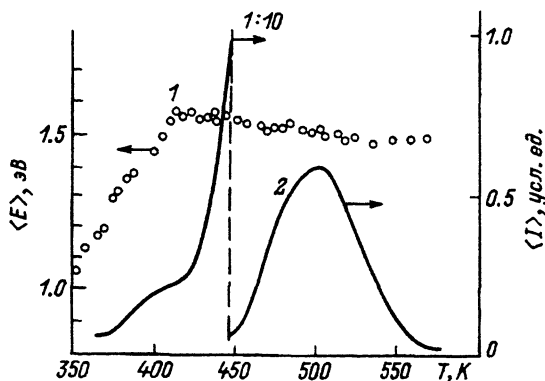


Рис. 4. Температурная зависимость средней энергии активации $\langle E \rangle(T)$ (1) и амплитуда осцилляций интенсивности термовысвечивания $\langle I \rangle(T)$ (2) кристалла оксида бериллия (табл. 2, образец 5).

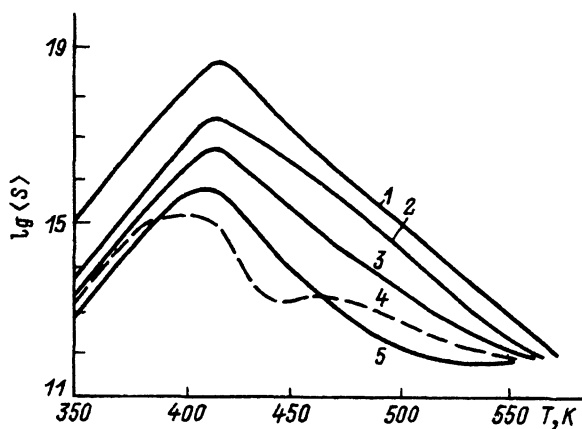


Рис. 5. Температурная зависимость среднего частотного фактора $\langle S \rangle(T)$ кристаллов оксида бериллия с различным содержанием парамагнитных центров (1-5). Номера кривых соответствуют номерам образцов в табл. 2.

рис. 4, 5, при температуре $T_F \sim 420$ К кривые $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ имеют максимум и далее с ростом температуры их значения уменьшаются. Обращают на себя внимание следующие обстоятельства.

1) Температурное положение максимума T_F на кривых $\langle E \rangle(T)$ и $\langle S \rangle(T)$ слабо зависит от концентрации V^{2+} -центров (рис. 4, 5 и табл. 2).

2) Численные значения $\langle E \rangle$ и $\langle S \rangle$ при температуре T_F являются повышенными и не могут быть сопоставлены с реальными параметрами термоактивационного процесса. Наблюдается тенденция понижения значений $\langle E \rangle(T_F)$ и $\langle S \rangle(T_F)$ с ростом концентрации V^{2+} -центров (табл. 2).

3) Интенсивность термостимулированной люминесценции в области температуры T_F является крайне незначительной по сравнению с амплитудой основного $\langle E_m \rangle$ (рис. 4).

Сопоставление экспериментальных данных с результатами расчета (рис. 1–3) позволяет предположить, что особенности термостимулированного процесса в BeO в области 420 К могут быть обусловлены возмущающим воздействием флуктуационной перестройки структуры, описываемой моделью П. Т.е. в области температур около 380 К в BeO предполагается существование термофлуктуационного процесса, понижающего высоту потенциального барьера некоторой части V^{2+} -центров захвата. Это обуславливает надтермический вклад делокализованных носителей заряда в общий термостимулированный процесс, существенно изменяющей его кинетику. Параметры ФПС и V^{2+} -центров определяют температурное положение максимума проявления надтермического вклада в общем термостимулированном процессе. При более высоких температурах доля надтермического процесса снижается вследствие возрастания вклада от невозмущенного термостимулированного процесса (16).

Похожий эффект может быть достигнут введением в кристалл BeO $[\text{Li}]^0$ -центров. Их термический распад происходит при 430 К путем делокализации дырки. Это также приводит к возрастанию “невозмущенного” вклада в общий термостимулированный процесс (рис. 5, кривая 4) и соответственно снижению доли надтермической эмиссии и понижению наблюдаемых значений $\langle E_F \rangle(T)$ и $\langle S_F \rangle(T)$.

Проведенные нами ранее исследования динамики решетки BeO методами дилатометрии [12] и адиабатической калориметрии [13] показали, что существуют серьезные основания обсуждать наличие в температурной области 320–350 К размытых фазовых переходов в катионной подрешетке BeO . Предложены две возможные модели таких переходов: 1 — смещение катиона Be^{2+} из регулярного узла в междоузлие, 2) — термостимулированное смещение катиона между двумя устойчивыми позициями в регулярном узле. Возможность изменения позиции катиона в BeO косвенным образом подтверждается также наблюдением диэлектрической петли гистерезиса [14]. Размытые фазовые переходы в катионной подрешетке BeO вполне подходят на роль предполагаемой ФПС, понижающей потенциальный барьер V^{2+} -центров.

Таким образом, результаты настоящей работы показывают, что термостимулированный процесс с кинетикой, отличной от таковой для первого порядка, в условиях флуктуационной перестройки структуры зависит от концентрации центров захвата. Анализ в рамках модели ФПС позволил выделить две альтернативные ситуации, когда ФПС

оказывает воздействие либо на все центры захвата данного сорта, либо на их часть. С ростом концентрации центров захвата в первом случае величина надтермического вклада ФПС в общий термостимулируемый процесс возрастает, во втором уменьшается. Это дает возможность выбора между двумя модельными случаями при анализе экспериментальных данных.

Экспериментальное исследование ТСЛ BeO с концентрационной серией зондовых V^{2+} -центров в области 300–600 К методом модуляционной термоактивационной спектроскопии в сочетании с анализом результатов в модели ФПС позволило объяснить наблюдаемые “аномалии” в кинетике термостимулированного процесса при 420 К понижением высоты потенциального барьера небольшой части V^{2+} -центров под влиянием размытых фазовых переходов в катионной подрешетке BeO . Этот результат имеет также важное практическое значение, поскольку надтермический вклад “возмущенных” центров в области основного дозиметрического пика ПСЛ BeO приводит к ухудшению воспроизводимости дозиметрической информации в области малых доз ионизирующих излучений. Введение крайне незначительных концентраций $[\text{Li}]^0$ -центров существенно понижает долю надтермической эмиссии в общем термостимулированном процессе в области 400–450 К.

В целом полученные экспериментальные и теоретические результаты показывают перспективность использования метода модуляционной термоактивационной спектроскопии и модели ФПС для анализа широкого круга процессов в конденсированном состоянии вещества.

Авторы признательны В.А.Маслову за предоставление кристаллов оксида бериллия.

Список литературы

- [1] Огородников И.Н., Курпа В.И., Кружалов А.В. // ЖТФ. 1991. Т. 61. Вып. 7. С. 67–75.
- [2] Огородников И.Н., Курпа В.И., Кружалов А.В. // ЖТФ. 1993. Т. 63. Вып. 5. С. 70–80.
- [3] Огородников И.Н., Кружалов А.В., Маслов В.А. // ЖТФ. 1994. Т. 64. Вып. 3. С. 100–108.
- [4] Chen R., Kirsh H. Analysis of Thermally Stimulated Processes. Oxford: Pergamon Press. 256 p.
- [5] Тале И.А. // Изв. АН СССР. Сер. физ. 1986. Т. 50. № 3. С. 556–562.
- [6] Tale I.A. // Phys. Stat. Sol. (A). 1981. Vol. 66. N 1. P. 65–75.
- [7] Гиниятулин К.Н., Кружалов А.В., Маслов В.А., Шульгин Б.В. Изв. АН СССР. Сер. неорганич. матер. 1983. Т. 19. № 6. С. 1014–1015.
- [8] Гиниятулин К.Н., Кружалов А.В., Шульгин Б.В. // Радиационно-стимулированные явления в твердых телах. Свердловск, 1983. С. 3–12.
- [9] Огородников И.Н., Иванов В.Ю., Кружалов А.В. // ЖПС. 1991. Т. 54. № 4. С. 605–610.
- [10] Кружалов А.В., Огородников И.Н., Шульгин Б.В. Собственные и примесные дефекты в оксиде бериллия. Деп. в ВИНТИ. Свердловск, 1990. № 425.
- [11] Тале И.А., Кортюв В.С., Попов В.В. Изв. вузов. Сер. физ. 1982. № 1. С. 89–90.
- [12] Солодухин А.В., Кружалов А.В., Мазуренко В.Г. и др. // ФТТ. 1987. Т. 29. Вып. 4. С. 1254–1257.
- [13] Данилов С.В., Кружалов А.В., Мазуренко В.Г. // ФТТ. 1980. Т. 22. Вып. 10. С. 3169–3171.
- [14] Sawada I., Hirotsu S., Iwamura I., Shiroshi Y. // J. Phys. Soc. Jap. 1973. Vol. 35. N 3. P. 946.